

#2

PCT/JPG0/05729

日 本 国 特 許 庁

24.08.00

PATENT OFFICE
JAPANESE GOVERNMENT

8/02

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日
Date of Application:

1 9 9 9 年 1 0 月 6 日

REC'D 13 OCT 2000

出 願 番 号
Application Number:

平成 1 1 年 特 許 願 第 2 8 5 5 5 3 号

WIPO

PCT

出 願 人
Applicant (s):

松下電器産業株式会社

JP 0065729

4

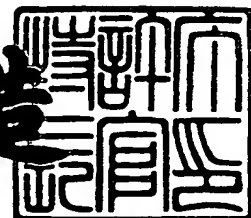
PRIORITY
DOCUMENT

SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

2 0 0 0 年 9 月 2 9 日

特 許 庁 長 官
Commissioner,
Patent Office

及 川 耕 造



出 証 番 号 出 証 特 2 0 0 0 - 3 0 7 8 7 4 4

【書類名】 特許願
 【整理番号】 2033710125
 【提出日】 平成11年10月 6日
 【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 H01M 8/00

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 松下電器産業株式会社内

【氏名】 内田 誠

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 松下電器産業株式会社内

【氏名】 森田 純司

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 松下電器産業株式会社内

【氏名】 安本 栄一

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 松下電器産業株式会社内

【氏名】 堀 喜博

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 松下電器産業株式会社内

【氏名】 吉田 昭彦

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 松下電器産業株式会社内

【氏名】 脇田 英延

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府守口市松下町 1 番 1 号 松下電池工業株式会社内

【氏名】 菅原 靖

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 松下電器産業株式会社内

【氏名】 神原 輝壽

【特許出願人】

【識別番号】 000005821

【氏名又は名称】 松下電器産業株式会社

【代理人】

【識別番号】 100097445

【弁理士】

【氏名又は名称】 岩橋 文雄

【選任した代理人】

【識別番号】 100103355

【弁理士】

【氏名又は名称】 坂口 智康

【選任した代理人】

【識別番号】 100109667

【弁理士】

【氏名又は名称】 内藤 浩樹

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 011305

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9809938

【プルーフの要否】 不要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 高分子電解質型燃料電池とその製造方法

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 高分子電解質膜と、前記高分子電解質膜を挟んで配置した燃料極および空気極と、前記空気極に酸化剤ガスを供給排出し、燃料極に燃料ガスを供給排出するガス流路を有する一対のセパレータ板とで構成した高分子電解質型燃料電池において、前記燃料極は、1 g あたり 15 m^2 以上の活性比表面積を持つ触媒を有することを特徴とする高分子電解質型燃料電池。

【請求項 2】 燃料極は、触媒担持カーボン粉末と、高分子電解質と、前記高分子電解質を溶解する有機溶媒との混合物を、導電性電極板または高分子電解質膜の表面に塗布することで形成したことを特徴とする請求項 1 記載の高分子電解質型燃料電池の製造方法。

【請求項 3】 高分子電解質を溶解する有機溶媒は、20℃における誘電率が 1.1 以上の溶媒を含有することを特徴とする請求項 2 記載の高分子電解質型燃料電池の製造方法。

【請求項 4】 高分子電解質を溶解する有機溶媒は、溶解度パラメータが $2.1 (\text{J} / \text{cm}^3)^{1/2}$ 以上で $2.7 (\text{J} / \text{cm}^3)^{1/2}$ 以下の溶媒を含有することを特徴とする請求項 2 または 3 記載の高分子電解質型燃料電池の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、高分子電解質を用いた燃料電池に関し、特にその構成要素である燃料極に関する。

【0002】

【従来の技術】

一般的に燃料電池の発電特性は、燃料ガス、電解質、電極、各構成単位相互の接触、いわゆる三相界面の状態により決定される。特に電解質に高分子電解質を用いた高分子型燃料電池では、電解質と電極間の接触面積を増大させることが放電特性の向上につながる。これまで、電解質と電極との界面の改良の方法として

は、電極材料と高分子電解質とを混合分散させた層を、電解質膜と多孔質電極との界面に配置する試みがなされてきた。例えば、特公昭 6 2 - 6 1 1 1 8 号公報、特公昭 6 2 - 6 1 1 1 9 号公報では、高分子電解質の溶液と触媒化合物の混合物を高分子膜上に塗着し、電極材料とホットプレスした後、触媒化合物を還元するか、または還元後塗着し、ホットプレスを行う方法が提案されている。

【 0 0 0 3 】

また、特公平 2 - 4 8 6 3 2 号公報では、多孔質電極を成型後、電極上にイオン交換樹脂の溶液を散布し、この電極とイオン交換膜とをホットプレスする方法が提案されている。さらに、特開平 3 - 1 8 4 2 6 6 号公報では、高分子樹脂表面に高分子電解質を被覆した粉末を、特開平 3 - 2 9 5 1 7 2 号公報では、高分子電解質の粉末を電極中に混合する方法が提案されている。そして、特開平 5 - 3 6 4 1 8 号公報では、高分子電解質、触媒、炭素粉末、フッ素樹脂を混合し、成膜して電極とする方法も提案されている。

【 0 0 0 4 】

以上の提案では、固体高分子電解質の溶液には、全てアルコール類の溶媒を用いている。さらに、米国特許 5, 2 1 1, 9 8 4 号公報では、グリセリンもしくはテトラブチルアンモニウム塩を溶媒として、高分子電解質と触媒と炭素粉末のインク状分散液を作成し、ポリテトラフルオロエチレン（以下、P T F E という）製フィルム上に成型した後、高分子電解質膜表面に転写する方法や、高分子電解質膜の交換基を N a 型に置換した後、その膜表面に上記インク状分散液を塗布し、1 2 5 ℃以上で加熱乾燥し、交換基を再度 H 型に置換する方法が提案されている。また、特開平 9 - 2 2 3 5 0 3 号公報では、電極の乾燥工程では除去できない沸点 1 0 0 ℃以上の 3 価以下のアルコール系溶媒を用いて多孔質な触媒層を得るための方法が開示されている。

【 0 0 0 5 】

また一般に、約 2 0 0 ℃以下の酸性電解質を用いる燃料電池の電極触媒としては、白金触媒が空気極、燃料極ともに用いられる。燃料としては純水素が必要であるが、水素ガスのインフラが確立していないため、一般に天然ガスを原料としてこれを改質したものや、液体であることの利便性からメタノールを改質したも

のなどが用いられる。ただし、これら炭化水素を含む原料を、水素リッチなガスに改質した改質ガスは、燃料電池の電極中に配置した触媒を被毒する一酸化炭素を含む。燃料電池用の改質装置の内には、一酸化炭素の含有量を低減する取り組みがなされているが、数十から数百 p p m の微量の一酸化炭素がどうしても改質ガスに含有される。

【 0 0 0 6 】

この改質ガスを燃料電池の燃料に用いると、これに含有された一酸化炭素が、電極中の P t 触媒の表面に吸着し、水素の酸化反応を妨害するいわゆる触媒被毒現象が生じる。その解決策として、特開平 7 - 2 4 6 3 3 6、7 - 2 9 9 3 5 9、8 - 6 6 6 3 2、8 - 5 0 9 0 9 4、1 0 - 2 7 0 0 5 6 号公報では、P t 触媒を R u や M o, N i, F e などと合金化し、吸着した一酸化炭素を酸化除去することが提案されている。さらに、特開昭 6 3 - 9 7 2 3 2 号公報や特開平 3 - 2 2 3 6 1 号公報に開示されているように、耐一酸化炭素被毒触媒の、多くはメタノール酸化触媒としても機能する。

【 0 0 0 7 】

【発明が解決しようとする課題】

しかしながら、上記の電極構造やその作成方法は、主に空気極における酸素の還元反応を向上するための取り組みであり、燃料極における燃料ガスとして改質ガス、つまり一酸化炭素や二酸化炭素を含む水素ガス、及びメタノールの酸化反応を促進するための、電極構造の最適化はなされていなかった。

【 0 0 0 8 】

この点に関して、特開平 1 0 - 2 7 0 0 5 6 号公報では P t 黒と合金触媒を用いた取り組み、また、特開平 9 - 2 7 3 2 6 号公報では気相反応の触媒と電気化学反応の触媒の 2 層構造を用いる方法、特開平 9 - 3 5 7 3 2 号公報では電極面内の触媒組成を変化させる方法が開示されているが、何れの方法でも電極中の触媒層内での、触媒金属の分布に関するものであり、高分子電解質と触媒金属との接触面積を増大させるための取り組みではない。

【 0 0 0 9 】

また以上の取り組みでは、燃料極用の合金触媒として、高活性な触媒組成を開

示しているが、それら合金触媒の十分な有効活性面積を確保するための、電極構造とその作成方法については検討がなされていないため、実用上の電極としての十分な性能は得られない。

【0010】

ガス拡散電極中の触媒層では、燃料ガスの供給路となるガスチャネルと、水素ガスの還元後に生成する水素イオンのイオンパスとなる高分子電解質と、電子の伝導パスである触媒担体との、三相で形成される反応界面が十分に確保されていなければ、高い電極性能は得られない。ガス拡散電極の三相界面は、空気極と燃料極ではそれぞれ最適化された構造を必要とする。従来技術では、過電圧の大きい空気極の特性を改善する目的で、空気の拡散を前提として、比較的多孔質な構造の電極とすることが望ましいとされた。そこで、上記の米国特許5,211,984号などの他に、特開平9-120821、6-203852、9-199138号などのように、造孔剤を含有し除去する行程によって、電極の多孔質構造を確保する取り組みが開示されている。

【0011】

しかし、燃料極では、反応ガスが水素であるため、ガスの拡散が早い。従って、空気極とは異なる専用の設計がなされた触媒層の構造が必要となる。つまり、燃料極は空気極よりも比較的に緻密な構造で、ガス拡散性能よりむしろ触媒活性面積を重視した構造が必要となる。

【0012】

本発明は上記の課題を解決するものであり、高分子電解質と燃料極中の触媒とを十分かつ均一に接触させることにより、電極内部の反応面積を増大させ、より高い耐一酸化炭素被毒性能を発揮し、これにより高い水素酸化性能を持つ高分子電解質型燃料電池とその製造方法を提供する。

【0013】

【課題を解決するための手段】

以上の課題を解決するために本発明の高分子電解質型燃料電池は、高分子電解質膜と、前記高分子電解質膜を挟んで配置した燃料極および空気極と、前記空気極に酸化剤ガスを供給排出し、燃料極に燃料ガスを供給排出するガス流路を有す

る一対のセパレータ板とで構成した高分子電解質型燃料電池において、前記燃料極は、1 gあたり 15 m^2 以上の活性比表面積を持つ触媒を有することを特徴とする。

【0014】

これを実現するためには、燃料極は、触媒担持カーボン粉末と、高分子電解質と、前記高分子電解質を溶解する有機溶媒との混合物を、導電性電極板または高分子電解質膜の表面に塗布することで形成したことを特徴とする製造方法が望ましい。

【0015】

このとき、高分子電解質を溶解する有機溶媒は、 20°C における誘電率が11以上の溶媒を含有することが望ましい。

【0016】

さらに、高分子電解質を溶解する有機溶媒は、溶解度パラメータが $21(\text{J}/\text{cm}^3)^{1/2}$ 以上で $27(\text{J}/\text{cm}^3)^{1/2}$ 以下の溶媒を含有することが望ましい。

【0017】

【発明の実施の形態】

本発明のポイントは、電極の触媒層に於いて、触媒を担持したカーボン粉末の表面に、高分子電解質を均一かつ広範囲に被覆し、触媒の活性比表面積を触媒1 gあたり 15 m^2 以上とすることで、耐一酸化炭素被毒触媒またはメタノール酸化触媒として高い性能を発揮させることにある。この構成を実現するため、高分子電解質を溶解するための特定の有機溶媒を用い、この溶媒に溶かした高分子電解質と、触媒担持カーボン粉末とを混合して触媒層塗料を作成する。この触媒層塗料を導電性電極板または高分子電解質膜の表面に塗布することで、高い活性を有する高分子電解質型燃料電池用の燃料極を作成することができる。

【0018】

特に、 20°C における誘電率(ϵ)が11以上の有機溶媒は、旭硝子(株)のフレミオン溶液やデュボン(株)のナフィオン溶液を代表とするようなプロトン導電性の高分子電解質溶液と相溶するため、高分子電解質と触媒担持カーボン粉末が均一かつ高分散に混合された触媒層塗料を得ることができる。また、溶解度

パラメータが $21 (\text{J}/\text{cm}^3)^{1/2}$ 以上で $27 (\text{J}/\text{cm}^3)^{1/2}$ 以下、さらに好ましくは溶解度パラメータ $23 (\text{J}/\text{cm}^3)^{1/2}$ 以上で $25 (\text{J}/\text{cm}^3)^{1/2}$ 以下の有機溶媒を選択することにより、触媒層塗料の分散性が向上し、触媒層塗料が乾燥する際のひび割れを防止することが出来、導電性電極板または高分子電解質膜の表面に均質かつ平滑な触媒層を形成することができる。

【0019】

上記、有機溶媒の代表例として、2-プロパノール、1-ブタノールが最も好ましく、1-プロパノール、2-メチル2-プロパノール、2-メチル1-プロパノール、エタノールを用いることが出来る。

【0020】

【実施例】

以下、実施例により具体的に説明する。

【0021】

(実施例1)

粒径 $1 \sim 10 \text{ nm}$ の Pt-Ru 微粉末を、25重量%担持したケッチェンブラック粉末 30 g と、水 86 g とを混合し、これに高分子電解質溶液（9重量%のフレミオン溶液、旭硝子製）248 g を加えた。その後、 20°C における誘電率（ ϵ ）が 11 以上であり、溶解度パラメータが $21 (\text{J}/\text{cm}^3)^{1/2}$ 以上で $27 (\text{J}/\text{cm}^3)^{1/2}$ 以下の各種有機溶媒を 140 g 加え攪拌し、燃料極用の触媒層塗料を作成した。ここで用いた有機溶媒を表 1 に示した。また、有機溶媒の代わりにイオン交換水を用いて触媒層塗料を作成した。

【0022】

つぎに、実施例の水と有機溶媒の代わりに、 20°C における誘電率（ ϵ ）10 以下であり、溶解度パラメータが $21 (\text{J}/\text{cm}^3)^{1/2}$ 以下の有機溶媒の代表例である n-酢酸ブチルを用いて触媒層塗料を作成し、これを比較例とした。

【0023】

以上の方法で作成した触媒層塗料を用いて電極を作成した。電極は上記の触媒層塗料を、ガス拡散層となるカーボンペーパー（東レ製、TGP-H-120、膜厚 $360 \mu\text{m}$ ）上に塗布し、これを乾燥することで触媒層とし、上記のカーボンペー

パーとを合わせて燃料極とした。

【0024】

次に、空気極を以下の方法で作成した。粒径 $1 \sim 10 \text{ nm}$ の白金微粉末を 25 重量%担持したケッチェンブラック粉末 30 g と、水 86 g と、高分子電解質溶液（9 重量%のフレミオン溶液、旭硝子製）248 g を混合した。これに、 n -酢酸ブチルを 140 g 加え攪拌し、空気極用の触媒層塗料とした。これをガス拡散層となるカーボンペーパー（東レ製、TGP-H-120、膜厚 $360 \mu\text{m}$ ）上に塗布し、乾燥することで触媒層とし、上記のカーボンペーパーとを合わせて空気極とした。以上の構成での白金添加量は、燃料極では電極面積当たり 0.5 mg/cm^2 、空気極は 0.35 mg/cm^2 とした。

【0025】

以上の方法で作成した電極を、触媒面を内側にして、高分子電解質膜（Dupont 製、Nafion 112）の両側に配し、ホットプレスを行い、電極-電解質接合体（MEA）を作製した。このMEAをセパレータ板で挟み込んで単電池の構成とした。ここで用いたセパレータ板は、カーボン粉末材料を冷間プレス成形したカーボン板に、フェノール樹脂を含浸・硬化させガスシール性を改善した樹脂含浸したものを扱い、これに切削加工でガス流路を形成した。ガス流路は、幅 2 mm 、深さ 1 mm とした。ガス流路の周辺部には、ガス供給・排出用と、電池の温度を制御するための冷却水を供給・排出するためのマニホールド孔を設けた。

【0026】

このようにして単電池を 50 セル積層し、両端部に金属製の集電板と電気絶縁材料でできた絶縁板、さらに端板を順に重ね合わせ、そして、これらを貫通させたボルトとナットにより、両端板を締結して積層電池を作製した。この時の締結圧はセパレータの面積当たり 10 kgf/cm^2 とした。電池モジュール締結のための締結ロッド部は、ガスの給排出口が開いている側面とは異なる側面に設けた。

【0027】

次に、フェノール樹脂をガスシール材として扱い、この溶液を積層電池の側面

に塗布乾燥させることによって積層電池の側面を被覆し、シール部を形成した。この時、ガスの供給排出口、冷却水の供給排出口が、シール材により閉塞されないようにした。また、外部マニホールドのシール面と接する部分は、できるだけ平滑な面が得られるよう注意してフェノール樹脂を塗布した。

【0028】

つぎに、ステンレス鋼製の半円筒状の外部マニホールドを積層電池側面に露出する空気の供給口の列を覆うように設けた。同様に、空気の排出口、水素の供給口とその排出口、冷却水の供給口とその排出口の列をそれぞれ覆うようにマニホールドを設けた。これらの外部マニホールドの固定は端板部ビスで行った。また、外部マニホールドと電池の側表面を覆うシール材との間のシールは、独立気泡を有するのエチレン-プロピレン-ジエン三元共重合体配合物（EPDM）シートを所定の外部マニホールドシール面の形にカットしてガスケットとした。

【0029】

このようにして作成した電池スタックの、燃料極に純水素ガスまたは、（水素 80%、二酸化炭素 20%、一酸化炭素 50 ppm）組成の燃料ガスを供給し、空気極に空気を供給した。そして、電池温度を 75℃、燃料ガス利用率（U_f）70%、空気利用率（U_o）20%とした。ガスの加湿は、燃料ガスを 85℃、空気を 65～70℃のバブラーをそれぞれ通して行った。以上の条件で電池特性を評価した。

【0030】

また、以下の方法で上記電池の電極中の触媒活性面積を求めた。電池スタックの燃料極と空気極にそれぞれ窒素と水素を供給した。この時の流量は、水素ガスを燃料ガス利用率 70% 相当の流量で、窒素を空気利用率 20% 相当の流量とした。そして、電池の温度を 75℃として、水素を 85℃、窒素を 65℃のバブラーを通して供給し、空気極側を参照極兼対極として、サイクリックボルタモグラム手法を用いて燃料極の電気化学的な水素の吸脱着波形を測定した。この測定では、走査速度を 10 mV/s として、0.05 V～1.00 V の走査範囲で、波形が安定するまで走査した。ここで、0.05～0.4 V 付近の水素脱離波形の面積により、水素の吸着電気量（Q）を求めた。これをもちいて、Pt の単位面

積あたりの水素吸着電気量 ($210 \times 10^{-6} \text{C} / \text{cm}^2$) と、電極面積 (S)、担持密度 (d) から、 $S_{Pt} = Q / (S \cdot d \cdot 210 \times 10^{-6})$ を用いて、触媒の活性面積 S_{Pt} を求めた。

【0031】

【表1】

	有機溶媒	溶解度パラメータ (J/cm^3) ^{1/2}	誘電率 (ϵ) (20°C)	沸点 (°C)	触媒 活性面積 ($\text{m}^2/\text{g-Pt}$)	耐CO被毒特性 ($\text{Uf}70, 85^\circ\text{C}$, $\text{Uo}20, 70^\circ\text{C}$)	純水素特性 ($\text{at}0.7\text{A}/\text{cm}^2, \text{Uf}70$, $80^\circ\text{C}, \text{Uo}20, 65^\circ\text{C}$)
実施例	2メチル-2ブタノール	21.7	-	82.4	19.2	3.1	31.45
	2メチル-1ブタノール	21.9	18.8	107	16.5	9.5	31
	1-ブタノール	23.3	17.8	117.7	19.2	2.1	21.4
	2-ブタノール	23.5	18.6	82.4	19.7	1.8	33.3
	1-ブタノール	24.91	-	97.4	18.1	4.35	32.15
	エタノール	26	25.7	87.6	20.2	1.8	31
	水	47.9	78.3	100	22.6	2.1	31.5
比較例	n-酢酸エチル	17.6	5.1	126.5	8.1	13.5	32

【0032】

以上の結果を表1に示した。表1では、燃料極の触媒層塗料に用いた有機溶媒の溶解度パラメータ、誘電率 (ϵ)、沸点、上記手法により算出した触媒活性面積、耐一酸化炭素被毒特性、純水素特性を示した。耐一酸化炭素特性とは、電極面積あたりの電流密度 $700 \text{mA} / \text{cm}^2$ における純水素と水素80%、二酸化炭素20%、一酸化炭素約50ppmの組成の燃料ガスとの単電池電圧の電圧差とした。また、純水素特性は、電極面積あたりの電流密度 $700 \text{mA} / \text{cm}^2$ における電池電圧とした。

【0033】

表1において、比較例の電池はPt量1gあたりの触媒活性面積が 8.1m^2 であり、耐一酸化炭素被毒特性が13.5V低下した。これに比べて実施例の電池はPt量1gあたりの触媒活性面積が 15m^2 以上であり、純水素の特性を31V以上に維持したまま、耐一酸化炭素被毒特性を9.5V以下に抑制することができた。

【0034】

実施例で用いた有機溶媒のうち、溶解度パラメータが $23 (\text{J} / \text{cm}^3)^{1/2}$ 以上

で $25 (\text{J} / \text{cm}^3)^{1/2}$ 以下の有機溶媒である 2-プロパノール、1-ブタノールは 19 m^2 以上の触媒活性面積を有し、2. 1 V 以下の優れた耐一酸化炭素被毒特性が得られた。

【0035】

エタノールや水を用い場合にも、それぞれ 1. 8 V、2. 1 V の優れた耐一酸化炭素被毒特性が得られたが、電極表面のひび割れが生じ、純水素特性が 2-プロパノール、1-ブタノールと比較して低くなった。

【0036】

【表 2】

	有機溶媒	メタノール特性 (at 0.3 A/cm ² , U ₀ 20, 65°C)
実施例	2-メチル-2-プロパノール	30
	2-メチル-1-プロパノール	29.25
	1-ブタノール	27.5
	2-プロパノール	33.75
	1-プロパノール	31.1
	エタノール	29.5
	水	27.5
比較例	n-酢酸ブチル	20

【0037】

表 2 に、本発明の電池の燃料極に、80°C の 2 M / 1 メタノール水溶液を供給し、電極面積あたりの電流密度を $300 \text{ mA} / \text{cm}^2$ としたときの、電池電圧をメタノール特性として示した。表 2 の結果より、比較例の電池は、メタノール特性が 20 V であったのに比較して、実施例の有機溶媒を用いた電池は、29 V 以上のメタノール特性が得られた。実施例 1 の有機溶媒のうち、溶解度パラメータが $23 (\text{J} / \text{cm}^3)^{1/2}$ 以上の $25 (\text{J} / \text{cm}^3)^{1/2}$ 以下の有機溶媒である 2-プロパノール、1-ブタノールは、32. 5 V 以上の優れたメタノール特性が得られた。エタノールや水を用い場合にもそれぞれ 29. 5 V、27. 5 V の優れたメタノール特性が得られたが、他の有機溶媒と比較して低い結果となった。この結果は、電極の表面が、ひび割れていたことによるものとする。

【0038】

また他の比較例として、誘電率 (ϵ) が 10 以下のメチユアニルケトン ($\epsilon = 9.8$)、プロピルフォルメイト ($\epsilon = 7.7$)、テトラヒドロフラン ($\epsilon = 7.6$)、酢酸プロピル ($\epsilon = 6.0$)、酢酸ペンチル ($\epsilon = 4.8$)、ジブチルエーテル ($\epsilon = 4.2$)、ベンゼン ($\epsilon = 2.3$)、トルエン ($\epsilon = 2.2$)、ヘキサン ($\epsilon = 1.9$) などとはすべて高分子電解質をコロイド化もしくは沈殿させるため、緻密な触媒層の状態を実現できず、耐一酸化炭素被毒特性及びメタノール特性が比較例よりさらに悪化した。

【0039】

また、本実施例の燃料極は、電極基盤状に触媒層を形成したが、膜に直接に触媒層塗料を塗工得うる方法でも同様の結果が得られた。今回は、触媒として実施例に示した Pt-Ru 触媒を用いたが、他の耐一酸化炭素被毒触媒やメタノール酸化触媒でも効果があり、本発明の触媒に限らず他の触媒にも利用できると考えられる。また、実施例のケッチェンブラック粉末に限らず、アセチレンブラックやファーネスブラックなど他の導電性カーボンブラックにも適用でき、本実施例に限定されるものではない。

【0040】

【発明の効果】

以上、実施例の説明から明らかなように、本発明による燃料電池は、燃料極触媒層において、触媒担体の表面近傍に十分な触媒活性比表面積を持つ高分子電解質層が形成されることを特徴とする燃料電池である。この高分子電解質層の形成には、高分子電解質と触媒担持カーボン粉末と 20℃における誘電率 (ϵ) 11 以上の有機溶媒、特に溶解度パラメータが $21(\text{J}/\text{cm}^3)^{1/2}$ 以上で $27(\text{J}/\text{cm}^3)^{1/2}$ 以下の有機溶媒、さらに望ましくは溶解度パラメータが $23(\text{J}/\text{cm}^3)^{1/2}$ 以上で $25(\text{J}/\text{cm}^3)^{1/2}$ 以下の有機溶媒を用いた。この有機溶媒の効果により、触媒近傍に緻密な高分子電解質層を形成し、効率的なプロトンチャネルと白金に吸着した一酸化炭素やメタノール分子を効率よく酸化するに十分な触媒活性面積と、水素ガスもしくはメタノール蒸気を十分に供給するためのガスチャネルを形成する。それにより、高い放電性能を発揮する高分子型燃料電池を実現することが可能となる。

【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 高分子電解質型燃料電池の燃料極における燃料ガスとして、改質ガスつまり一酸化炭素や二酸化炭素を含む水素ガス、及びメタノールの酸化反応を促進するための電極構造の最適化を図る。

【解決手段】 セパレータを構成する金属薄板上で、電極が位置する主要部にプレス成形などによってガス流路を形成し、この表面部分に導電性酸化物層を形成する。

【選択図】 なし

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [0 0 0 0 0 5 8 2 1]

1. 変更年月日 1 9 9 0 年 8 月 2 8 日

 [変更理由] 新規登録

 住 所 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地

 氏 名 松下電器産業株式会社

